

## 平成28年度実施方針

環境部

1. 件名：（大項目）有機ケイ素機能性化学品製造プロセス技術開発

2. 根拠法

国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構法第十五条第一号ニ及び第二号

3. 背景及び目的・目標

化学産業は我が国の一大産業であり、高い国際競争力を誇る製品を多数生み出している。一方で、同産業は化石資源を大量に消費し、二酸化炭素（CO<sub>2</sub>）排出量も多い。地球温暖化が懸念され、輸入に頼る石油の価格上昇や枯渇リスクに直面する中、化学品製造の革新的イノベーションの実現により、こうした課題を乗り越えていくことが急務となっている。

本プロジェクトは、エネルギー多消費の既存の有機ケイ素原料の製造プロセスに代わる新たな革新的省エネプロセスと高機能な有機ケイ素部材の製造プロセスを実現するための触媒技術及び触媒プロセス技術を開発するものであり、有機ケイ素工業のエネルギー制約を克服するためには、不可欠な技術開発である。さらには、本技術の確立は、我が国の有機ケイ素工業の国際的競争力の強化につながるものである。

また、有機ケイ素工業においてシリコーンの硬化や有機ケイ素化合物の製造に広く用いられるヒドロシリル化触媒は、古くから利用されているPt触媒であり、使用量が微量ではあるものの、高価である、供給不安がある、用途によっては回収が困難である、残存による製品性能が低下する、等の問題があり、これを代替する触媒の開発が求められている。加えて、有機ケイ素工業の主製品であるシリコーンは、安定性、耐侯・耐熱性、透明性といった特性から、有機ポリマー部材に比べて高価であるにもかかわらず広い産業分野で使用されているが、より性能を向上させることが求められており、これには構造制御やコンタミの防止が重要な課題である。さらに、特定の構造を有する有機ケイ素部材は、その製造工程で大量の無機物が排出され、環境面・コスト面で問題があるため、このような問題の無い製造プロセスが求められている。

以上のように、有機ケイ素工業がエネルギー面、コスト面等の問題を解決し、安定的に高機能な有機ケイ素部材を安価に提供するための革新的製造プロセスの確立が求められている。

本プロジェクトでは、有機ケイ素に係る新たな触媒技術及び触媒プロセス技術を開発することにより、上述した課題を解決することを目的とする。これにより、有機ケイ素原料製造プロセスを確立し、大幅な省エネルギー化を実現させる。また、有機ケイ素部材の製造コストの低減と性能の向上を図り、その市場を拡大させるとともに、我が国の産業競争力を強化させる。

具体的には、委託事業として以下の項目を実施する。

#### 研究開発項目①「砂からの有機ケイ素原料製造プロセス技術開発」

##### 【最終目標（平成33年度末）】

1kgスケールでケイ砂の反応率50%、有機ケイ素原料の選択率50%を達成する。  
触媒反応の実用化に向けて必要となるプロセス要素技術を特定し、その工業的实施可能性を1kgスケールで検証する。

##### 【中間目標（平成26年度末）】

複数の反応経路とそれぞれの反応における触媒の中心元素の種類や配位子構造等について複数の候補を選定する。

##### 【中間目標（平成28年度末）】

ケイ砂を原料に用いる際の技術課題を抽出する。  
反応経路と触媒について有望な組合せを絞り込む。

##### 【中間目標（平成31年度末）】

ケイ砂の反応率50%、有機ケイ素原料の選択率50%を達成すると見込まれる反応経路と触媒を選定し、温度や反応媒体等の最適な反応条件について指標を得る。  
原料に用いるケイ砂の処理方法等を選定する。

#### 研究開発項目②「有機ケイ素原料からの高機能有機ケイ素部材製造プロセス技術開発」

##### 【最終目標（平成33年度末）】

1kgスケールで有機ケイ素原料の反応率80%、有機ケイ素部材の選択率80%を達成する。  
有機ケイ素部材中の残留触媒の低減を達成する。  
有機ケイ素部材の構造制御技術を確立する。

##### 【中間目標（平成26年度末）】

複数の高機能有機ケイ素部材を想定した各種反応に用いられる触媒の活性中心元素や配位子構造等について複数の候補を選定する。

##### 【中間目標（平成28年度末）】

反応経路と触媒について有望な組合せを絞り込む。

##### 【中間目標（平成31年度末）】

有機ケイ素原料の反応率80%、有機ケイ素部材の選択率80%を達成すると見込まれる反応経路と触媒を選定し、温度や反応媒体等の最適な反応条件について指標を得る。

#### 4. 実施内容及び進捗（達成）状況

プロジェクトマネージャーにNEDO環境部 高木雅敏主査を任命して、プロジェクトの進行全体の企画・管理を担当させ、プロジェクトに求められる技術的成果及び政策的効果を最大化させた。

国立研究開発法人産業技術総合研究所・触媒化学融合研究センターの佐藤一彦研究センター長をプロジェクトリーダーとし、以下の研究開発を実施した。なお、平成25年度までは経済産業省の執行の下で事業を実施した。

#### 4. 1 平成27年度事業内容

本事業では、安定的に高機能な有機ケイ素部材を安価に提供するための革新的製造プロセスの確立を目的に、必要となる触媒及び触媒プロセスの技術開発を実施している。

平成26年9月に開催した中間評価において、本事業は高付加価値な有機ケイ素部材の製造方法の確立に向け意欲的な開発を行っており、製造工程の省エネ化・低コスト化や産業の国際競争力強化に貢献する産業戦略上重要なテーマであると高く評価されている。

##### ・研究開発項目①「砂からの有機ケイ素原料製造プロセス技術開発」

金属ケイ素を経由しないQ単位構造（ケイ素原子に酸素原子が4つ結合している構造）中間原料製造法の開発として、炭酸ジアルキルを経由するアルコールと二酸化ケイ素（ $\text{SiO}_2$ ）からのテトラアルコキシシランの製造方法について反応条件を検討し、テトラメトキシシランを収率80%以上（ $\text{SiO}_2$ 基準）で製造できる条件を見出した。さらに無機脱水剤であるモレキュラーシーブス（MS）を用いた高効率テトラエトキシシラン合成プロセスを新たに開発し、使用したMSは、減圧乾燥をすることで容易に再生可能であることを明らかにした。

Q単位構造中間原料からの有機ケイ素原料製造技術の開発に関しては、水素を還元剤としたヒドロシラン合成において、一部の基質に対して有効な触媒を見出した。また、前周期遷移金属錯体が塩素化剤及びヒドリド化剤存在下アルコキシシランの水素化触媒となることを見出した。また、固体触媒を用いた検討を開始し、テトラアルコキシシラン単独での反応特性を調べた。

砂等の $\text{SiO}_2$ 原料の骨格構造を部分的に保持したビルディングブロック型の有機ケイ素原料製造法の開発を開始し、ケイ酸塩から骨格構造を部分的に保持した可溶成分を取り出す条件を見出した。

高活性ケイ素化学種を利用する方法については、高活性ケイ素化学種を発生させ各種有機基質等との反応を検討し、新規化合物の生成を示唆する結果を得た。また、高活性化学種の反応性を確認するため、合成化学的手法による高活性化学種誘導体の合成の検討を開始した。

（実施体制：産業技術総合研究所－（共同実施先）コルコート株式会社（再委託先）大阪大学、群馬大学、早稲田大学）

##### ・研究開発項目②「有機ケイ素原料からの高機能有機ケイ素部材製造プロセス技術開発」

ケイ素－炭素結合形成技術において、ヒドロシリル化反応用触媒の開発を実施し、鉄やニッケルの錯体触媒、多座配位子触媒及び金属微粒子触媒の有望な候補触媒を多数見出した。さらに配位子構造等の改良に取り組み、特に鉄触媒において触媒活性を大幅に向上できることを見出した。新規なケイ素－炭素結合形成反応については、カップリング反応によりアリルシランやアリール

シランを合成する反応について、錯体触媒の中心金属や配位子構造を検討し、有効な触媒を見出した。

ケイ素-酸素結合形成技術においては、選択的にケイ素-酸素結合を形成できる反応の開発について、不安定で中間原料としての利用が限定されていたシラノールを、無水条件で安定に合成する触媒反応を見出し、さらに複合体の粉体として単離する手法を確立した。これらの手法により、ビルディングブロックとして利用可能なシラノール類を種々合成できるようになった。クロスカップリング反応に関しては、ルイス酸触媒や遷移金属触媒等を用いた検討を行い、中心元素の種類や基質構造の影響、触媒量や反応媒体等の反応条件が触媒反応効率や選択性に与える影響を調べ、規則構造を持つポリシロキサン合成に有効な手法を見出した。

ケイ素-ケイ素結合形成技術においては、脱水素カップリング反応について触媒の種類や反応条件等を変えた実験を行い、高次シランを無触媒条件に比べ高収率で得る触媒と反応条件を見出すとともに、触媒寿命向上のための検討を実施した。

触媒固定化技術の開発においては、検討を開始し、開発したヒドロシリル化用高活性錯体触媒を固定化するための配位子を設計した。

(実施体制：産業技術総合研究所－(共同実施先) 東レ・ダウコーニング株式会社 (共同実施先) 昭和電工株式会社、大阪市立大学、群馬大学、早稲田大学、関西大学)

#### 4. 2 実績推移

	24年度	25年度	26年度	27年度
実績額推移				
一般会計(百万円)	200(経済産業省)	200(経済産業省)	—	—
需給会計(百万円)	—	—	210	619
特許出願件数(件)	1	8	18	24
論文発表数(件)	0	0	3	8
学会・フォーラム等(件)	4	11	31	47

ただし、平成24、25年度の実績額は経済産業省直轄事業。

平成27年度実績は予定分含む。

#### 5. 事業内容

プロジェクトマネージャーにNEDO環境部 佐藤秀治主査を任命して、プロジェクトの進行全体の企画・管理を担当させ、プロジェクトに求められる技術的成果及び政策的効果を最大化させる。

国立研究開発法人産業技術総合研究所・触媒化学融合研究センターの佐藤一彦研究センター長をプロジェクトリーダーとして、以下の研究開発を実施する。

## 5. 1 平成28年度事業内容

### ・研究開発項目①「砂からの有機ケイ素原料製造プロセス技術開発」

金属ケイ素を経由しないQ単位構造中間原料製造法の開発については、アルコールとSiO<sub>2</sub>からアルコキシシランを製造する反応の原料、反応条件、触媒、脱水手法等について更に検討を進めるとともにシミュレーション等を用いて製造プロセスの開発を行い、ケイ砂を原料に用いる際の技術課題を抽出するとともに、反応経路と触媒について有望な組合せを絞り込む。

Q単位構造中間原料からの有機ケイ素原料製造技術の開発については、水素を還元剤として用いる反応等について金属錯体触媒や金属ナノ粒子触媒を用いた検討を継続するとともに、アルキル化反応等について固体触媒を用いた検討を継続し、更なる取組を行う触媒や反応経路の候補を絞り込む。

砂等のSiO<sub>2</sub>原料の骨格構造を部分的に保持したビルディングブロック型の有機ケイ素原料製造法の開発については原料の種類や触媒等の検討を継続する。

高活性ケイ素化学種を経由した有機ケイ素原料製造法の開発に関しては、各種有機基質等との反応検討を継続し、本手法の有効性を見極める。

その他、アルキル化反応等の新たな手法として、プラズマ利用技術等の可能性について検討を継続する。

なお、それぞれの検討において、必要に応じて反応機構等に関し理論計算によるシミュレーション検討を行う。

### ・研究開発項目②「有機ケイ素原料からの高機能有機ケイ素部材製造プロセス技術開発」

ケイ素-炭素結合形成技術のうちヒドロシリル化反応用の触媒開発に関しては、平成27年度までの結果を踏まえ、触媒活性向上、触媒毒への耐性、難基質への対応等の観点で、それぞれの触媒の特性に合わせた反応系を定め、触媒や反応条件等を引き続き検討するとともに、工業化のための課題を抽出し、今後さらに取り組んでいく反応系と触媒を絞り込む。新規なケイ素-炭素結合形成技術に関しては、カップリング反応により有機ケイ素化合物を合成する反応の触媒について触媒種や反応条件等の検討を継続し、今後さらに検討していく反応経路と触媒の組み合わせを絞り込む。微粒子触媒については詳細な分析を継続実施して技術の有用性を調べる。

ケイ素-酸素結合形成技術に関しては、シラノール合成法及び分析法の改良を進めて、更に多種のシラノール類を原料として扱えるようにする。また、これらを原料とした合成反応を引き続き検討するとともに、工業化のための課題を抽出し、今後更に取り組む反応経路や触媒の組み合わせを絞り込む。非対称アルコキシシランの合成やこれを原料とする構造制御ポリシロキサン製造法についても、引き続き検討する。クロスカップリング反応に関しては、原料としてアシロキシシランを用いた反応等について検討を継続するとともに、工業化のための課題を抽出し、今後更に取り組んでいく触媒系や反応系を絞り込む。

ケイ素-ケイ素結合形成技術に関しては、脱水素カップリング反応による高次シランの選択的製造について、反応条件における触媒寿命評価を継続するとともに、触媒活性、選択性及び触媒

寿命の向上のための検討を継続し、今後更に検討する触媒を絞り込む。

触媒の固定化検討については、開発したヒドロシリル化触媒等の錯体触媒の固定化検討を継続する。

なお、それぞれの検討において、必要に応じ反応機構等に関し理論計算によるシミュレーション検討を行う。

## 5. 2 平成28年度事業規模

### 委託事業

需給勘定

348百万円（継続）

※事業規模については、変動があり得る。

## 6. その他重要事項

### (1) 評価の方法

NEDOは、技術的及び産業技術政策的観点から、研究開発の意義、目標達成度、成果の技術的意義及び将来への波及効果等について、技術評価実施規程に基づき、プロジェクト評価を実施する。外部有識者による中間評価を平成28年6月～平成28年10月に実施する。

### (2) 運営・管理

NEDOは、主としてプロジェクトリーダーを通して研究開発実施者と緊密に連携し、研究開発の進捗状況を把握する。具体的には、プロジェクトリーダー、委託先機関等からのヒアリングにより、開発目標に対する成果状況などの報告を受け、運営管理に反映する。また、優れた研究成果を上げるために、研究加速についても弾力的に対処するなど予算の効果的配分に努める。さらに、外部有識者で構成する技術検討委員会を組織し、定期的に技術評価を受け、目標達成の見通しを常に把握することに努める。

### (3) 複数年度契約の実施

本事業は、平成26年度の単年度契約を期間延長し、平成28年度までの複数年度契約を行っている。

### (4) 知財マネジメントに係る運用

「NEDOプロジェクトにおける知財マネジメント基本方針」に従ってプロジェクトを実施する。

## 7. スケジュール

平成28年9月～平成29年3月・・・技術検討委員会（予定）

## 8. 実施方針の改定履歴

平成28年2月、制定。

平成28年4月、プロジェクトマネージャーの変更、実績推移の更新に伴う改訂。

